

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-247328

(43)Date of publication of application : 24.09.1993

(51)Int.Cl.

C08L 67/02  
C08L 69/00  
// (C08L 67/02  
C08L 69:00  
C08L 55:02  
C08L 63:00 )

(21)Application number : 04-221025

(71)Applicant : GENERAL ELECTRIC CO &lt;GE&gt;

(22)Date of filing : 20.08.1992

(72)Inventor : SCOBBO JAMES JOSEPH JR  
LAUGHNER MICHAEL PAUL  
DEKKERS MARINUS EMMANUEL J

(30)Priority

Priority number : 91 748596 Priority date : 22.08.1991 Priority country : US

## (54) COMPOSITION DERIVED FROM RECYCLED POLYCARBONATE AND POLYESTER

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a composition that gives moldings with improved mechanical properties, by blending a specified copolymer with a scrap plastic composition comprising a recycled polyester, a recycled polycarbonate, and a recycled impact modifier.

CONSTITUTION: The composition is obtained by blending (A) 1-97 pts.wt., based on the weight of the composition, of a recycled polyester, (B) 97-1 pts.wt. of a recycled polycarbonate, (C) 1-40 pts.wt. of an impact modifier, and (D) 1-40 pts.wt. of an epoxy-functionalized olefin copolymer derived from an unsaturated epoxy compound and an olefin. Polybutylene terephthalate or polyethylene terephthalate is preferable as component A; a polymer prepared by grafting shell component comprising a vinyl aromatic compound, etc., on a core formed from an alkyl acrylate or butadiene is preferable as component C; and a polyethylene-glycidyl methacrylate copolymer, etc., is preferable as component D.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 20.08.1992

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 13.12.1994

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

RECEIVED  
FEB 12 2002  
TC 1700

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

L1 ANSWER 6 OF 6 WPINDEX COPYRIGHT 2002 DERWENT INFORMATION LTD

AN 1993-078522 [10] WPINDEX

DNC C1993-034622

TI Prodn. of recycled polycarbonate-polyester compsns. - by blending with epoxy functionalised copolymer derived from epoxy cpd. and olefin.

DC A23 A35

IN DEKKERS, M E J; LAUGHNER, M P; SCOBBO, J J

PA (GENE) GENERAL ELECTRIC CO

CYC 7

PI EP 531008 A1 19930310 (199310)\* EN 7p C08J011-06

R: DE ES FR GB IT NL

JP 05247328 A 19930924 (199343) 5p C08L067-02 <--

ADT EP 531008 A1 EP 1992-307517 19920818; JP 05247328 A JP 1992-221025 19920820

PRAI US 1991-748596 19910822

REP EP 175220; EP 322095; EP 332772; WO 9116379

IC ICM C08J011-06

ICA C08L067-02; C08L069-00

ICI C08L055:02, C08L067-02, C08L069:00

AB EP 531008 A UPAB: 19931025

The prodn. of recycled resin comprises blending under reactive conditions (a) 1-97 pts. wt. of at least one reclaimed polyester; (b) 97-1 pts. wt. of at least one reclaimed polycarbonate; (c) 1-40 pts. wt. of a reclaimed impact modifier; and (d) 1-40 pts. wt. of an epoxy functional olefin copolymer derived from at least one unsatd. epoxy cpd. and at least one olefin.

The polyester is pref. polybutylene terephthalate or polyethylene terephthalate. The reclaimed polycarbonate comprises structural units of the formula  $-O-R_3-O-C(O)-$  (where  $R_3$  is radical of the formula  $A-Y-A_1$  A and  $A_1$  is monocyclic divalent radical, pref. p-phenylene, and Y is bridging radical in which one or two atoms separate A from  $A_1$  and is pref. isopropylidene; and at least 60% of the  $R_3$  gps. are aromatic). The impact modifier is a core shell polymer comprising a rubber core onto which is grafted at least one shell comprising a vinyl aromatic cpd., a vinyl cyanide cpd., an alkyl methacrylate, and/or a methacrylic acid. The alkyl methacrylate is methyl methacrylate. The rubber core is butadiene. The olefin is ethylene. The epoxy functionalised olefin copolymer is selected from a copolymer derived from ethylene and glycidyl methacrylate and a terpolymer derived from ethylene, glycidyl methacrylate and vinyl acetate.

USE/ADVANTAGE - Useful for processing scrap plastic resins without sorting. The compsn. can be moulded into shaped articles which exhibit excellent mechanical properties

Dwg. 0/0

FS CPI

FA AB

MC CPI: A04-G01C; A05-A04; A05-E01C; A05-E06; A07-A04A; A07-A04D; A08-M09B; A11-A03; A11-C03

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-247328

(43)公開日 平成5年(1993)9月24日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 67/02	LNZ	8933-4J		
69/00	LPN	8416-4J		
// (C 0 8 L 67/02				
69: 00				
55: 02				

審査請求 有 請求項の数8(全 5 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平4-221025	(71)出願人	390041542 ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ GENERAL ELECTRIC CO MPANY アメリカ合衆国、ニューヨーク州、スケネ クタディ、リバーロード、1番
(22)出願日	平成4年(1992)8月20日	(72)発明者	ジェームス・ヨセフ・スコボー、ジュニア アメリカ合衆国、ニューヨーク州、クリフ トン・パーク、フォックスウッド・ドライ ブ、217番
(31)優先権主張番号	7 4 8 5 9 6	(74)代理人	弁理士 生沼 純二
(32)優先日	1991年8月22日		
(33)優先権主張国	米国(US)		

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 リサイクルしたポリカーボネートおよびポリエステルから誘導される組成物

(57)【要約】

【目的】 ポリカーボネートおよびポリエステルのリサイクル。

【構成】 少なくとも1種のポリカーボネート、少なくとも1種のポリエステル及び少なくとも1種の衝撃変性剤から成るスクラッププラスチック組成物と、少なくとも1種の不飽和エポキシ化合物および少なくとも1種のオレフィンから誘導されるエポキシ官能化共重合体とを溶融ブレンドすることにより、リサイクルした組成物を製造する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】 反応性条件下で

(a) 組成物の重量を基準として約1乃至約97重量部の少なくとも1種の再生ポリエステル；

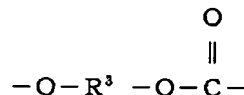
(b) 組成物の重量を基準として約97乃至約1重量部の少なくとも1種の再生ポリカーボネート；

(c) 組成物の重量を基準として約1乃至約40重量部の少なくとも1種の再生衝撃変性剤；及び

(d) 約1乃至約40重量部の、少なくとも1種の不飽和エポキシ化合物と少なくとも1種のオレフィンとから誘導されるエポキシ官能化オレフィン共重合体；をブレンドすることによるリサイクルした樹脂の製造方法。

【請求項2】 ポリエステルがポリブチレンテレフタレート又はポリエチレンテレフタレートである請求項1記載の方法。

【請求項3】 再生ポリカーボネートが式：



の構造単位を含む請求項1又は2記載の方法〔式中各 $\text{R}^3$ は夫々2価の脂肪族基、脂環式基又は芳香族基である〕。

【請求項4】  $\text{R}^3$ 基の総数の少なくとも60%が芳香族であり、そして各 $\text{R}^3$ 基が式： $-\text{A}-\text{Y}-\text{A}^1-$ を有する請求項3記載の方法〔式中A及び $\text{A}^1$ の夫々は単環式の2価の芳香族基であり、そしてYは1個又は2個の原子がAを $\text{A}^1$ から隔てている橋かけ基である〕。

【請求項5】 A及び $\text{A}^1$ の夫々がp-フェニレン基であり、そしてYがイソプロピリデン基である請求項4記載の方法。

【請求項6】 衝撃変性剤が、ビニル芳香族化合物、シアン化ビニル化合物、メタクリル酸アルキル、メタクリル酸又はこれらの混合物から成る少なくとも1種のシェルがゴムコア上にグラフトされたコア-シェルポリマーである請求項1乃至5のうちの1に記載の方法。

【請求項7】 メタクリル酸アルキルがメタクリル酸メチルであり、そしてコアがブタジエンである請求項6記載の方法。

【請求項8】 オレフィンがエチレンであり、そしてエポキシ官能化オレフィン共重合体がエチレンとメタクリル酸グリシジルから誘導される共重合体及びエチレン、メタクリル酸グリシジルおよび酢酸ビニルから誘導されるターポリマーから選ばれる請求項1乃至7のうちの1に記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の背景】本発明は、リサイクルしたプラスチック樹脂に関し、そして更に詳しくは、本発明はポリカーボネートとポリエステルとをブレンドすることにより製造される組成物に関する。毎年、万単位の自動車が消費者

に販売されている。自動車外装品の形態で数えきれないポンド量のプラスチックが、毎日消費者に販売されている。これにより、毎年処理の必要な億ポンド単位の生分解不可能な熱可塑性樹脂及び幾分の熱硬化樹脂のスクラップがもたらされる。環境上の理由から、スクラップ樹脂を有用な製品へとリサイクルするなど、この巨大で絶えず増大している量のプラスチック廃棄物の他の利用法を見い出すことが非常に望ましい。しばしば、廃棄物品は、例えば自動車のバンパーとフロントエンドといった不相容性の樹脂から成っている。経済上及び環境上の理由から、この種の不相容性スクラップ樹脂を選別することなく加工する方法を見い出すことが望ましい。

## 【0002】

【発明の概要】即ち、本発明により不相容性プラスチック樹脂スクラップから優れた機械的性質を発揮する成形品に成形可能な組成物が提供される。1つの観点においては、本発明により、220乃至320℃において、組成物全体の重量%で、

(a) 1乃至97%の少なくとも1種の再生ポリエステル；

(b) 97乃至1%の少なくとも1種の再生ポリカーボネート；

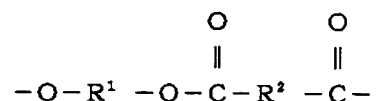
(c) 1乃至40%の再生衝撃変性剤；及び

(d) 約1乃至約40重量部の、少なくとも1種の不飽和エポキシ化合物と少なくとも1種のオレフィンとから誘導されるエポキシ官能化オレフィン共重合体；をブレンドすることにより得られる組成物を提供する。

【0003】又、本発明により、220乃至320℃において、組成物の総重量を基準として99乃至60%の、少なくとも1種のポリカーボネート、少なくとも1種のポリエステル及び少なくとも1種の衝撃変性剤と、1乃至40%の、少なくとも1種の不飽和エポキシ化合物と少なくとも1種のオレフィンとから誘導されるエポキシ官能化オレフィン共重合体とをブレンドすることによる組成物の製造方法を提供する。

## 【0004】

【発明の説明】本発明組成物において有用な線状ポリエステルの一群には、式(I)：



の構造単位を含むポリエステルが包含される。

【0005】各 $\text{R}^1$ は夫々約2乃至10個の炭素原子を含む2価の脂肪族基、脂環式基又は芳香族基であり、そして各 $\text{R}^2$ は夫々約2乃至10個、そして通常は約6乃至10個の炭素原子を含む2価の脂肪族基、脂環式基又は芳香族基である。前記単位を含むポリエステルは、ジヒドロキシ化合物と、ジカルボン酸又は無水物、酸クロリドもしくは低級アルキル（とりわけメチル）エステル（好ましくはエステル）等のジカルボン酸の官能性誘導

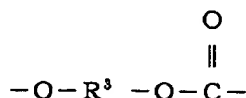
体との公知の反応により製造することができる。

【0006】 $R^1$  基は、約2乃至10個の炭素原子を含む1種以上の脂環式炭化水素基であることができ、脂環式基は本発明において脂肪族基と等価であることが当業者に公知である。この脂環式基又は脂肪族基は、最も頻繁には、エチレングリコール、1, 4-ブタンジオール、プロピレングリコール、1, 3-プロパンジオール、1, 6-ヘキサジオール、1, 10-デカンジオール、1, 4-シクロヘキサジメタノール及び2-ブテン-1, 4-ジオール等の脂肪族又は脂環式ジヒドロキシ化合物から誘導される。芳香族ジヒドロキシ化合物、とりわけ2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノールA)等のビスフェノールを使用することもできる。 $R^1$  基は、ジヒドロキシ化合物の反応性を実質的に変化させない置換基(例えばアルコキシ、ハロ、ニトリル等)又はヘテロ原子(例えば酸素もしくは硫黄等)を含むこともできる。この脂肪族又は脂環式基 $R^1$  は、通常飽和している。

【0007】 $R^2$  基は、コハク酸、アジピン酸、マレイン酸、イソフタル酸及びテレフタル酸、あるいは類似の置換されている酸及びヘテロ原子を含む酸等の酸から誘導することができる。そのほかに、 $R^1$  及び/又は $R^2$  の少なくとも一部分がポリ(オキシエチレン)又はポリ(オキシブチレン)等のソフトセグメント基であるポリマーも意図している。この種のポリマーは、重合反応にポリエチレングリコール、あるいはポリオキシアルキレンセグメントを含むジカルボン酸等の化合物を組み入れることにより製造することができ、そして典型的にはエラストマー性である。この種のポリエステルの代表例が、夫々ハイトレル(HYTREL)及びロモド(LOMOD)の商品名でそれぞれデュポン(DuPont)及びゼネラル・エレクトリックから入手可能である。

【0008】好ましくは、 $R^1$  及び $R^2$  は、典型的には約2乃至10個、好ましくは2乃至6個の炭素原子を含む炭化水素基である。最も頻繁には、 $R^1$  が脂肪族であり、そして $R^2$  が芳香族である。このポリマーは、最も望ましくはポリ(アルキレンテレフタレート)、特にポリブチレンテレフタレート又はポリエチレンテレフタレートである。

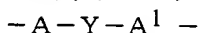
【0009】本発明で使用するポリカーボネートは当業界で周知であり、そして通常式(II)：



の構造単位を含む[式中各 $R^3$  は夫々2個の脂肪族基、脂環式基又は芳香族基であり、脂肪族又は脂環式である場合は通常約8個までの炭素原子を含む]。適切な $R^3$  基には、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ヘキサメチレン基、ドデカメチレン基、ポリ-1, 4-(2-ブテン)基、ポリ-1,

10-(2-エチルデシレン)基、1, 3-シクロペンチレン基、1, 3-シクロヘキシレン基、1, 4-シクロヘキシレン基、m-フェニレン基、p-フェニレン基、4, 4'-ビフェニレン基、ジメチルジフェニルメタン-4, 4'-イレン基、ベンゼン-1, 4-ジメチレン基(エチレン基のビニログであり、そして類似の性質を有する)、及び名称又は式(一般式又は具体式)で米国特許第4, 217, 438号明細書に開示されているジヒドロキシ化合物に対応する基などの類似する基が包含される。又、非炭化水素成分を含む基が包含される。この非炭化水素成分は、クロロ基、ニトロ基、アルコキシ基等の置換基、そしてまたチオ基、スルホキシ基、スルホン基、エステル基、アミド基、エーテル基及びカルボニル基等の連結基であることができる。しかし、最も頻繁には、全 $R^3$  基は炭化水素基である。

【0010】好ましくはこのポリカーボネート中の $R^3$  基の総数の少なくとも約60%、そして最も望ましくは $R^3$  基の全部が芳香族である。芳香族 $R^3$  基は、好ましくは式(III)：



を有する[式中A及び $A^1$  の夫々は単環式の2価の芳香族基であり、そしてYは1個又は2個の原子がAを $A^1$  から隔てている橋かけ基である]。式(III)中の遊離の原子価結合は、通常Yに対してA及び $A^1$  のメタ位又はパラ位にある。

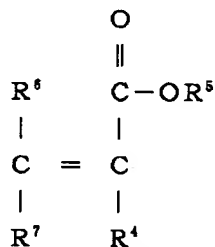
【0011】式(III)において、A及び $A^1$  基は置換されていないフェニレン基又は該フェニレン基の置換誘導体であることができ、置換基(1種以上)の代表例はアルキル基、アルケニル基(例えばビニル基及びアリル基等の架橋可能でグラフト可能な成分)、ハロ基(とりわけクロロ基及び/又はプロモ基)、ニトロ基、アルコキシ基等である。置換されていないフェニレン基が好適である。A基と $A^1$  基の両方がo-又はm-フェニレン基であるか、あるいは一方がo-又はm-フェニレン基であり、そして他方がp-フェニレン基であることができるが、好ましくは両方がp-フェニレン基である。

【0012】橋かけ基Yは、1個又は2個の原子、好ましくは1個の原子がAを $A^1$  から隔てている橋かけ基である。Yは、最も頻繁には炭化水素基であり、そして特にメチレン基、シクロヘキシルメチレン基、2-[2, 2, 1]ピシクロヘプチルメチレン基、エチレン基、イソプロピリデン基、2, 2-ジメチルプロピリデン基、1, 1-シクロヘキシレン基、1, 1-シクロペンタデシレン基、1, 1-シクロドデシレン基又は2, 2-アダマンチレン基等の飽和基であり、とりわけgem-アルキレン基である。しかし、そのほかに、不飽和基及び全体的にもしくは部分的に炭素及び水素以外の原子から成る基も包含される。かかる基の例には、2, 2-ジクロロエチリデン基、カルボニル基、オキシ基、チオ基及びスルホン基がある。入手可能性及び本発明に対する格

別な適合性から、好適な式 (I I I) の基は、ビスフェノールAから誘導され、そしてYがイソプロピリデン基であり、A及びA<sup>1</sup> が夫々p-フェニレン基である2, 2-ビス(4-フェニレン)プロパン基である。

【0013】前記衝撃変性剤は、通常、1種以上のシェルがゴムコアにグラフトして誘導されるコア-シェルポリマーから成る。コアがアクリル酸アルキルゴム又はブタジエンゴムであることが適切である。このコアに、1種以上のシェルがグラフトしている。シェルは、好ましくはビニル芳香族化合物、シアン化ビニル化合物、メタクリル酸アルキル(好ましくはメタクリル酸メチル)及び/又はメタクリル酸から誘導される。コア並びにシェルは、更に、架橋剤又はグラフト化剤として作用することができるメタクリル酸グリシジル及び無水マレイン酸等の化合物で官能化させることができる。適切な衝撃変性剤が、ローム・アンド・ハース社(Rohm and Haas Company)からKM653の商品名で市販されている。

【0014】少なくとも1種の不飽和エポキシ化合物と少なくとも1種のオレフィン、好ましくはエチレンとから誘導される前記エポキシ官能化オレフィン共重合体が、米国特許第4, 444, 950号、同4, 454, 284号、同4, 780, 505号、同4, 461, 871号及び欧州特許第180, 648号各明細書に記載されている。適切なエポキシ官能性グラフト単量体は、例えばアリルグリシジルエーテル、メタリルグリシジルエーテル等の不飽和アルコールのグリシジルエーテル；例えばイソプロペニルフェニルグリシジルエーテル等のアルケニルフェノールのグリシジルエーテル；エポキシ化オレイン酸のビニルエステル等のエポキシカルボン酸のビニル及びアリルエステル；などである。好適な種類には、式：



の不飽和エポキシ化合物が包含される〔式中R<sup>5</sup>はエポキシド官能性を有する有機基であり、R<sup>4</sup>は水素原子、炭素数1乃至8のアルキル基、炭素数6乃至13の芳香族有機基、アラルキル基、脂環式基及びこれらの混合物から成る群から選ばれる1個の基であり、そしてR<sup>6</sup>及びR<sup>7</sup>は好ましくは水素原子であるが、しかし何れもが水素原子、炭素数1乃至3のアルキル基、炭素数6乃至13の芳香族有機基、アラルキル基、脂環式基及びこれらの混合物から成る群から選ばれる1個の基であることができる〕。このエポキシ化合物には、不飽和カルボン酸のグリシジルエステル、即ち2-エチルアクリル酸グ

リシジル、2-プロピルアクリル酸グリシジル、アクリル酸グリシジルが包含される。本発明においてかかるグラフト単量体として好適なのは、メタクリル酸グリシジル(GMA)である。そのほかに本発明において使用するのに適切なものは、酢酸ビニル等のビニルエステル、前記オレフィン及びエポキシ化合物から誘導されるターポリマーである。本発明組成物は、必要に応じて約40重量%までの充填材を含むことができる。適切な充填材には、粒状又は繊維状の補強材、好ましくはガラス繊維が包含される。

【0015】前記反応性条件には、バッチ式及び連続式の両方の種類の従来からの熔融ブレンド装置内で行なうことができる熔融ブレンド操作が含まれる。押出物の優れた性質及び商業的ポリマー製造施設における押出機の利用可能性のために、前記操作をしばしば好ましくは押出機内で連続的に行なう。代表的な条件には、約220乃至320℃の範囲の温度が含まれる。

#### 【0016】

【実施例】当業者が本発明をより良く実施できる様に、以下の実施例を本発明に係わる優れた機械的特性の例証として示す。本発明が実施例に示した個々の詳細事項に限定されないこと、及び全ての部が重量部であることを理解すべきである。

#### 対照例

5部のポリカーボネートと、3部のポリブチレンテレフタレートと、2部のビスフェノールAポリカーボネート/ポリブチレンテレフタレート/KM653ブレンド(45部のビスフェノールAポリカーボネート、40部のポリブチレンテレフタレート及び15部のKM653)との再生ペレット化乾燥混合物(以下に再生ペレットという)を、ウエルディング・エンジニアズ(Welding Engineers)20mm二軸押出機により475°Fで配合した。ブレンドをペレット化し、そして85℃で3乃至4時間乾燥させた。その後、ブレンドを475°Fで機械的試験用のASTM試験片に射出成形した。

#### 実施例1

再生ペレットを、88部のポリエチレンと12部のGMAとから誘導され、スミトモ(Sumitomo Ltd.)からボンドファスト(Bondfast)E(以下にBF-Eという)として市販されているポリエチレン-メタクリル酸グリシジル共重合体と乾式ブレンドした以外は、対照例の方法に従った。再生ペレットのボンドファストEに対する比は、90部対10部であった。

#### 実施例2

再生ペレットのボンドファストEに対する比が80部対20部である以外は、実施例1の方法に従った。

#### 実施例3

再生ペレットを、83部のポリエチレン、12部のGMA及び5部の酢酸ビニルから誘導され、スミトモからボ

ンドファスト 2 B (以下に BF-2 B という) として市販されているポリエチレン-メタクリル酸グリシジル-酢酸ビニルターポリマーと乾式ブレンドした以外は、実施例 1 の方法に従った。

#### 実施例 4

ボンドファスト 2 B を用いた以外は実施例 2 の方法に従った。

【0017】

【表 1】

表 1

ブレンド	組成、重量部	モジュラス (k s i)	破壊点での 最大ひずみ (%)	切欠アイソ ット (フー ト・ボンド /インチ)
対照例	リサイクル、100	627	14	1.6
実施例 1	リサイクル/BF-E、 90/10	471	23	6.1
実施例 2	リサイクル/BF-E、 80/20	402	29	7.2
実施例 3	リサイクル/BF-2 B、 90/10	449	23	5.9
実施例 4	リサイクル/BF-2 B、 80/20	381	31	7.8

表 1 により、再生ペレットをポリエチレン-メタクリル酸グリシジル共重合体又はポリエチレン-メタクリル酸グリシジル-酢酸ビニルターポリマーとブレンドしたときの改良された機械的性能が例証された。

【0018】以上の教示から明らかな様に、本発明にお

ける他の変更例及び変動例が可能である。即ち、記載した本発明の具体的態様において、請求の範囲に定義した発明の完全に意図した範囲内での変形をなし得ることを理解すべきである。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>5</sup>  
C 08 L 63:00

識別記号 庁内整理番号

F I

技術表示箇所

(72) 発明者 マイケル・ボール・ラフナー  
アメリカ合衆国、ニューヨーク州、クリフ  
トン・パーク、キャリッジ・ロード、10番

(72) 発明者 マリナス・エマニュエル・ジョハンス・デ  
ッカー  
アメリカ合衆国、ニューヨーク州、スケネ  
クタディ、マックスウェル・ドライブ、  
871番